

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-003122

(43)Date of publication of application : 09.01.1996

(51)Int.Cl.

C07C211/54
C07C211/57
C09K 11/06

(21)Application number : 06-155470

(71)Applicant : HODOGAYA CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 15.06.1994

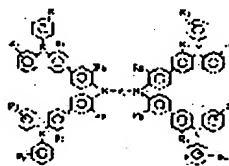
(72)Inventor : TOMIYAMA HIROMITSU
IHARA IKUKO
NAKANISHI NAOKO

(54) HEXAAMINE COMPOUND

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the new hexamine compound useful as an electric charge transfer substance capable of realizing organic electroluminescent elements excellent not only in luminous characteristics but also in emission stability and storage stability.

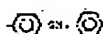
CONSTITUTION: This compound is represented by formula I [R1, R2 are H, lower alkyl, lower alkoxy, substituted or nonsubstituted aryl; R3 is H, methyl, methoxy, Cl; A is 1,4-phenylene, 1,3-phenylene, group of formula II (R4 is H, methyl, methoxy, Cl), groups of formula III-IX], e.g. N,N,N'-tetrakis(4'-diphenylamino-4-biphenyl)-O-triazine. The compound is obtained by condensing a corresponding halogenated biphenyldiphenylamine compound with a corresponding diamine compound, or by hydrolyzing the condensation product of a corresponding halogenated biphenylamine compound with an amide compound and subsequently condensing the obtained triamine compound with a corresponding dihalogenated product.



C



E



V



Y



III



VI



IX



IX

LEGAL STATUS

✓ [Date of request for examination] 12.06.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-3122

(43) 公開日 平成8年(1996)1月9日

(51) Int.Cl.⁶

C 0 7 C 211/54

211/57

C 0 9 K 11/06

識別記号

庁内整理番号

8517-4H

8517-4H

Z 9280-4H

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願平6-155470

(22) 出願日 平成6年(1994)6月15日

(71) 出願人 000005315

保土谷化学工業株式会社

神奈川県川崎市幸区堀川町66番地2

(72) 発明者 富山裕光

茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業株式会社筑波研究所内

(72) 発明者 伊原郁子

茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業株式会社筑波研究所内

(72) 発明者 中西直子

茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業株式会社筑波研究所内

(54) 【発明の名称】 ヘキサアミン化合物

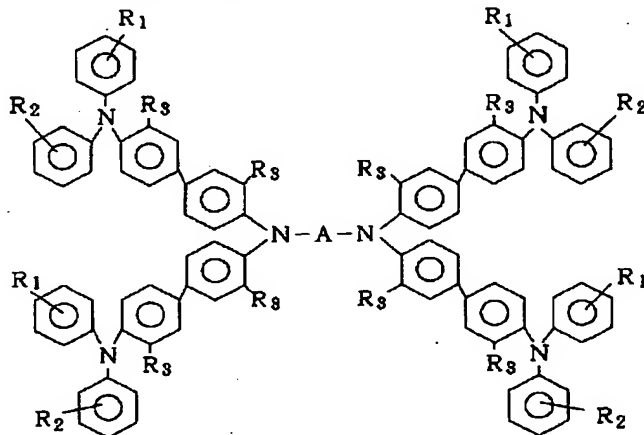
(57) 【要約】

【目的】 有機電界発光素子などに用いられる電荷輸送材料として有用な、新規ヘキサアミン化合物を提供する。

る。

【構成】 下記一般式で表されるヘキサアミン化合物。

【化1】



(式中、R1、R2、は同一でも異なっても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、置換または無置換のアリール基を表し、R3は水素原子、メチル

基、メトキシ基、または塩素原子を表し、また、Aは例えばフェニレン等の芳香族残基を表す。)

(2)

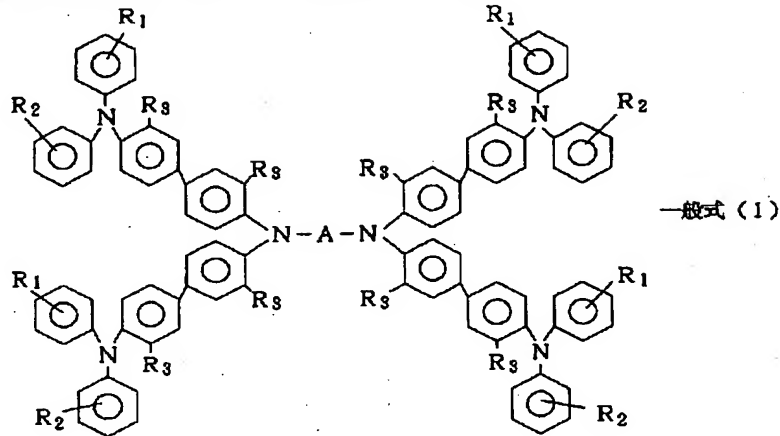
2

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式で表されるヘキサアミン化合物*

*物

【化1】

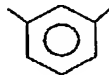


〔式中、R1、R2は同一でも異なっても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、置換または無置換のアリール基を表し、R3は水素原子、メチル基、メトキシ基、または塩素原子を表し、また、Aは下記式

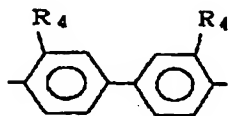
【化2】



【化3】

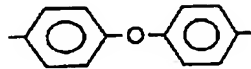


【化4】

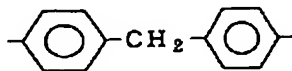


〔式中、R4は水素原子、メチル基、メトキシ基、塩素原子を表す。〕

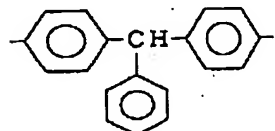
【化5】



【化6】

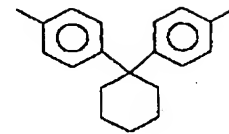


【化7】

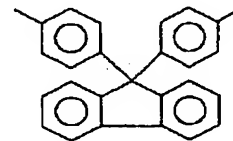


【化8】

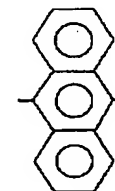
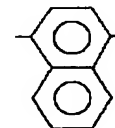
【化9】



【化10】



【化11】



で表される。〕

40 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、有機電界発光素子や電子写真感光体などに用いられる電荷輸送材料として有用な新規ヘキサアミン化合物に関する。

【0002】

【従来の技術】 有機化合物を構成要素とする電界発光素子は、従来より検討されていたが、十分な発光特性が得られていなかった。しかし、近年数種の有機材料を積層した構造とすることによりその特性が著しく向上し、以

50

(3)

3

行われている。この積層構造とした電界発光素子はコダック社のC. W. Tangらにより最初に報告されたが (Appl. Phys. Lett. 51 (1987) 913)、この中では10V以下の電圧で1000cd/m²以上の発光が得られており、従来より実用化されている無機電界発光素子が200V以上の高電圧を必要とするのに比べ、格段に高い特性を有することが示された。

【0003】これら積層構造の電界発光素子は、有機蛍光体と電荷輸送性の有機物（電荷輸送材）及び電極を積層した構造となっており、それぞれの電極より注入された電荷（正孔及び電子）が電荷輸送材中を移動して、それらが再結合することによって発光する。有機蛍光体としては、8-キノリノールアルミニウム錯体やクマリンなど蛍光を発する有機色素などが用いられている。また、電荷輸送材としては電子写真感光体用有機材料として良く知られた種々の化合物を用いて検討されており、例えばN, N'-ジ(m-トリル)-N, N'-ジフェニルベンジジンや1, 1'-ビス[N, N'-ジ(p-トリル)アミノフェニル]シクロヘキサンといったジアミン化合物や4-(N, N'-ジフェニル)アミノベンズアルデヒド-N, N'-ジフェニルヒドラゾンなどのヒドラゾン化合物が挙げられる。更に、銅フタロシアニンのようなポルフィリン化合物も用いられている。

【0004】ところで、有機電界発光素子は、高い発光特性を有しているが、発光時の安定性や保存安定性の点で充分ではなく、実用化には至っていない。素子の発光時の安定性、保存安定性における問題点の一つとして、電荷輸送材の安定性が指摘されている。電界発光素子の有機物で形成されている層は百～数百ナノメートルと非*

4

* 常に薄く、単位厚さあたりに加えられる電圧は非常に高い。また、発光や通電による発熱もあり、従って電荷輸送材には電気的、熱的あるいは化学的な安定性が要求される。更に、一般的に素子中の電荷輸送層は、非晶質の状態にあるが、発光または保存による経時により、結晶化を起こし、これによって発光が阻害されたり、素子破壊を起こすといった現象が見られている。この点、電荷輸送材には非晶質すなわちガラス状態を容易に形成し、かつ安定に保持する性能が要求される。

【0005】このような電荷輸送材に起因する発光素子の安定性に関し、例えば、ジアミン化合物やポルフィリン化合物においては、電気的、熱的に安定なものも多く、高い発光特性が得られているが、結晶化による素子の劣化は解決されていない。また、ヒドラゾン化合物は、電気的、熱的安定性において充分ではないため、好ましい材料ではない。

【0006】

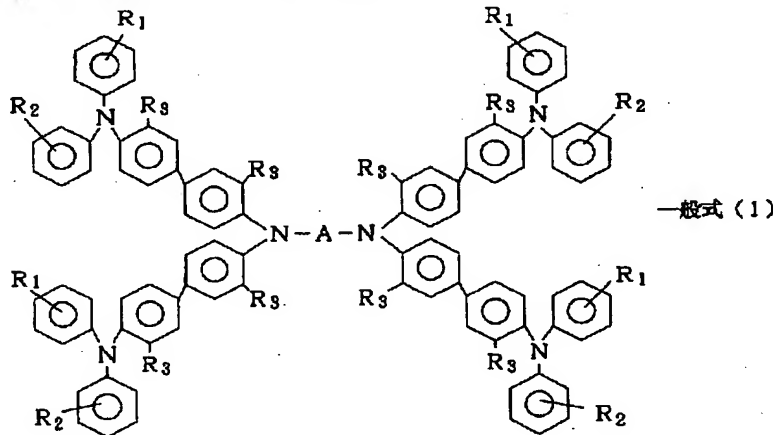
【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、発光特性のみならず、発光時の安定性、保存安定性に優れた有機電界発光素子を実現し得る電荷輸送材として有用で、かつ新規なヘキサアミン化合物を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、下記一般式(1)で表されるヘキサアミン化合物が提供される。

【0008】

【化12】



... (1)

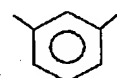
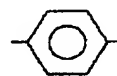
【式中、R1、R2は同一でも異なっても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、置換または無置換のアリール基を表し、R3は水素原子、メチル基、メトキシ基、または塩素原子を表し、また、Aは下記式

【0009】

【化13】

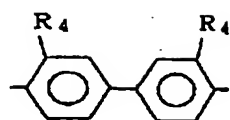
【0010】

【化14】



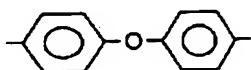
(4)

【0011】
【化15】

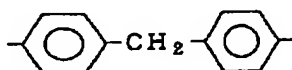


【0012】（式中、R4は水素原子、メチル基、メトキシ基、塩素原子を表す。）

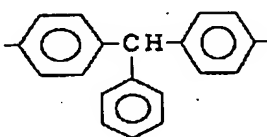
【0013】
【化16】



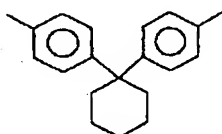
【0014】
【化17】



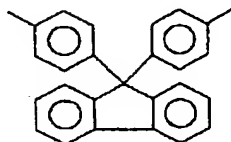
【0015】
【化18】



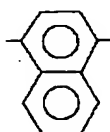
【0016】
【化19】



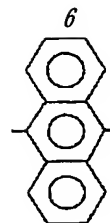
【0017】
【化20】



【0018】
【化21】



【0019】
【化22】



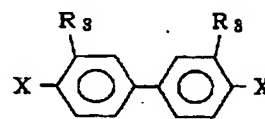
で表される。]

【0020】本発明の一般式（1）で表されるヘキサミン化合物は新規化合物であり、これらは、相当するハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物と相当するジアミン化合物とを縮合させることにより合成することができる。あるいはまた相当するハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物とアミド化合物との縮合反応による生成物を加水分解して得られるトリアミン化合物を相当するジハロゲン化物と縮合させることによっても合成することができる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。

【0021】例えば、下記式

【0022】

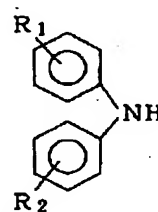
20 【化23】



【0023】（式中、R3は上で定義した通りであり、Xは塩素原子、臭素原子または沃素原子を表す。但し、R3とXは同時に塩素原子ではない。）で表される4,4'-ジハロゲン化ビフェニル化合物を下記式

【0024】

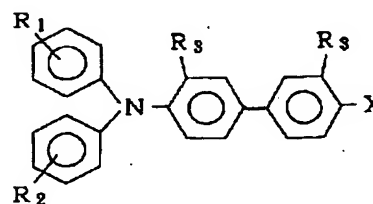
30 【化24】



【0025】（式中、R1、R2は上で定義した通りである）で表されるジフェニルアミン化合物と等量で縮合させ、下記式

40 【0026】

【化25】



【0027】（式中、R1、R2、R3、Xは上で定義した通りである。但し、R3とXが同時に塩素原子ではない。）で表される4'-ハロゲン化ビフェニルジフェニル

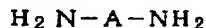
50

(5)

ニルアミン化合物が得られる。この4'-ハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物4当量を下記式

【0028】

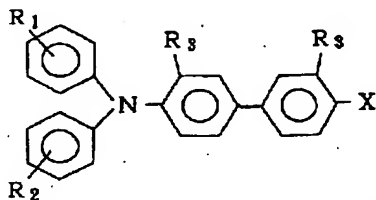
【化26】



【0029】(式中、Aは上で定義した通りであり、R4も同様に上で定義した通りである。)で表されるジアミン化合物1当量に作用させて縮合することにより、本発明のヘキサアミン化合物が得られる。一方、ジハロゲン化ビフェニル化合物とジフェニルアミン化合物より上

【0030】

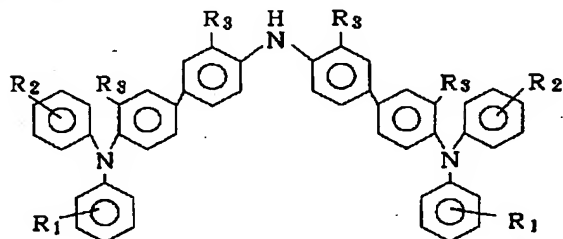
【化27】



【0031】(式中、R1、R2、R3、及びXは上で定義した通りである。但し、R3とXは同時に塩素原子ではない。)で表される4'-ハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物2当量をアセトアミド1当量に縮合させ、加水分解することにより、下記式

【0032】

【化28】



【0033】(式中、R1、R2、R3は上で定義した通りである。)で表されるトリアミン化合物が得られる。更にこのトリアミン化合物2当量を下記式

【0034】

【化29】



【0035】(式中、X及びAは上で定義した通りであり、R4もまた上で定義した通りである。但し、XとR4

8

は同時に塩素原子ではない。)で表されるジハロゲン化合物1当量に作用させ縮合することによっても本発明の化合物を得ることができる。また、前記縮合反応のうち、4'-ハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物2当量とアセトアミド1当量との縮合反応においては、アセトアミドの代わりにベンズアミドを用いても良い。

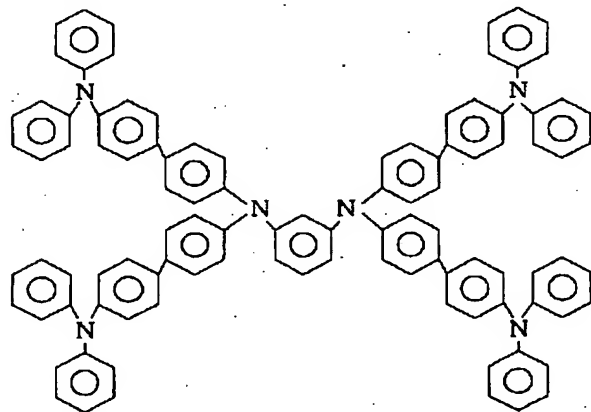
【0036】前述した、種々のハロゲン化アリアル類と種々のアミン化合物の縮合反応において、反応は無溶媒下または溶媒の存在下で行うが、溶媒としてはニトロベンゼンやジクロロベンゼンなどが用いられる。脱酸剤としての塩基性化合物には炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどが用いられる。また、通常、銅粉やハロゲン化銅などの触媒を用いて反応させる。反応温度は通常160~230°Cである。

【0037】本発明により得られた新規なヘキサアミン化合物は、容易にガラス状態を形成しかつ安定に保持すると共に、熱的、化学的にも安定であり、有機電界発光素子における電荷輸送材料として極めて有用である。また、基本的に高い電荷輸送能を有しており、電子写真感光体をはじめとする電荷輸送性を利用する素子、システムに有効な材料であることはいうまでもない。

【0038】このようにして得られた本発明の具体的な化合物を以下に示す。

【0039】

【化30】

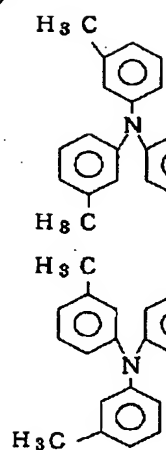


【0040】

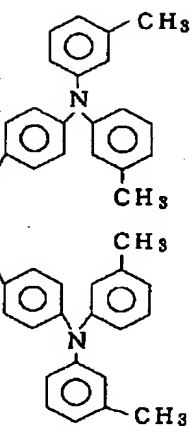
【化31】

(6)

9

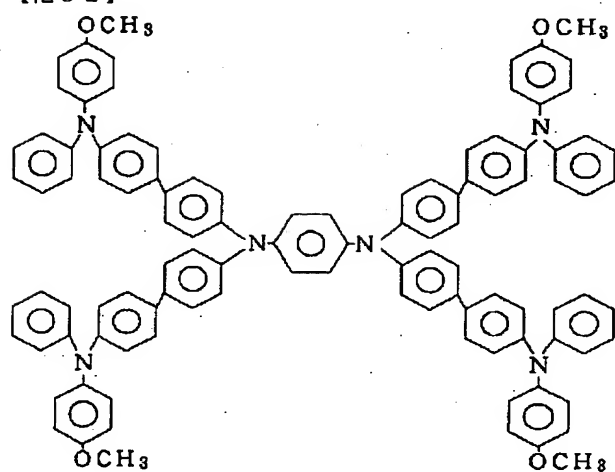


10



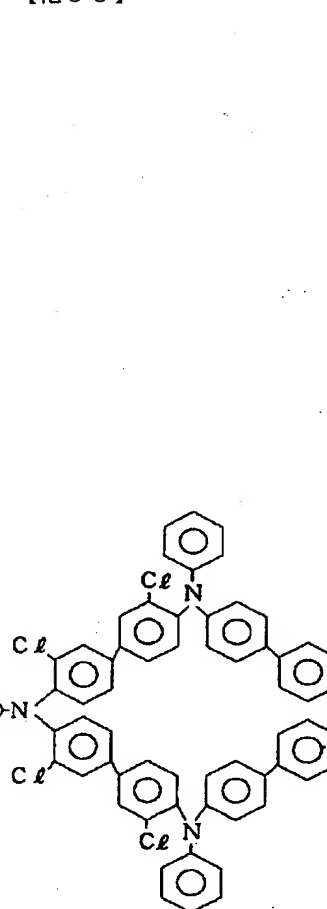
[0041]

[化32]

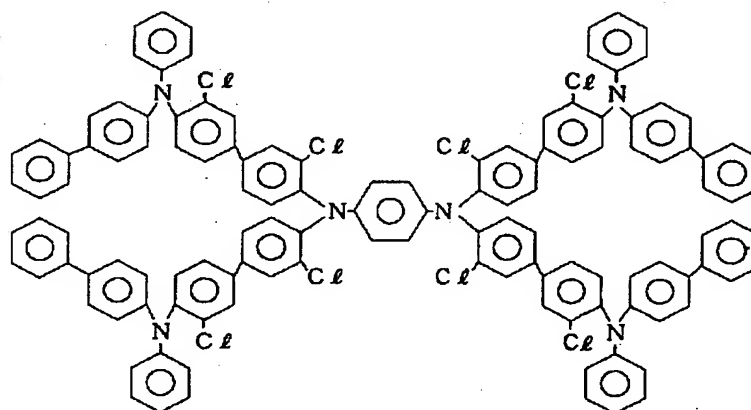


[0042]

[化33]



[0043]

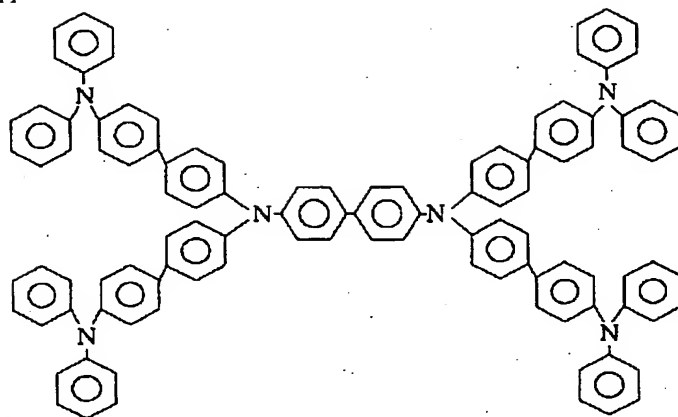


[化34]

(7)

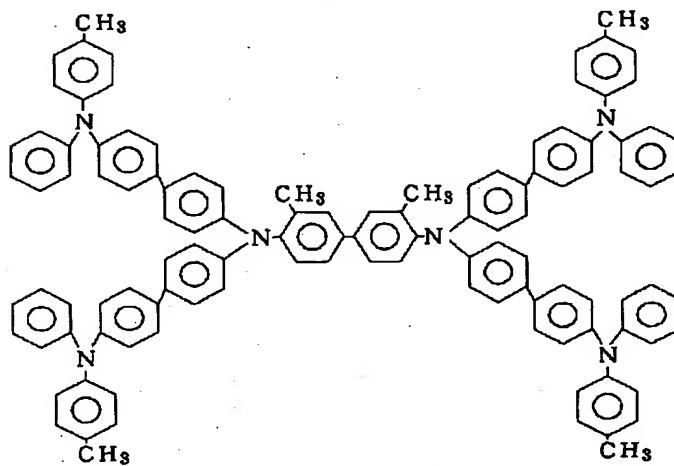
11

12



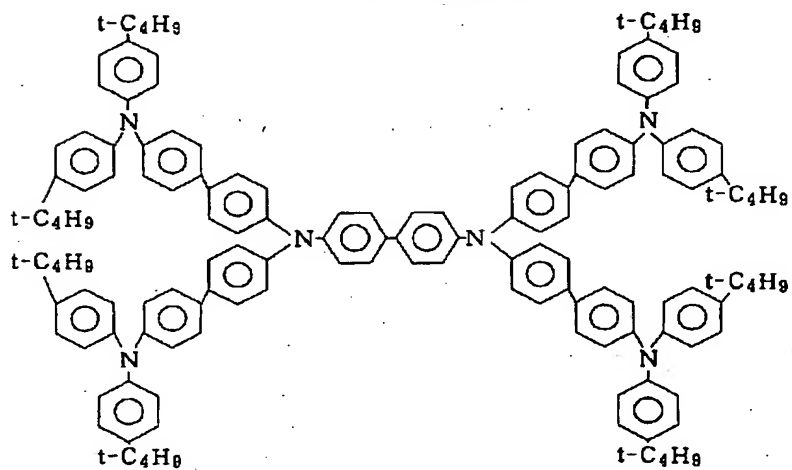
【0044】

* * 【化35】



【0045】

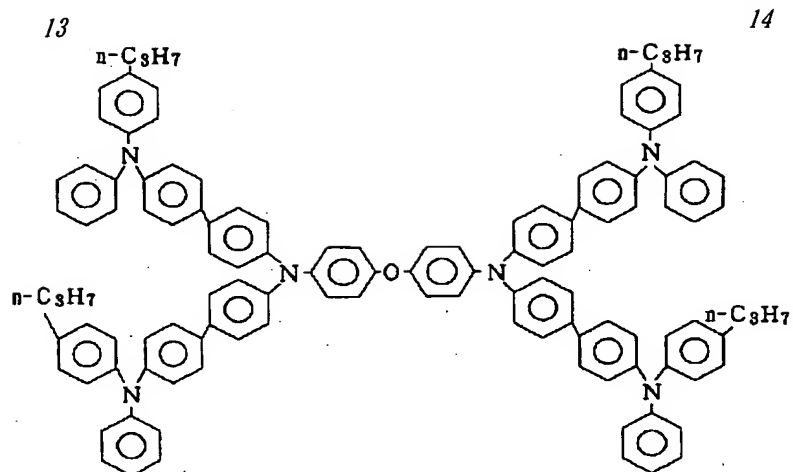
※ ※ 【化36】



【0046】

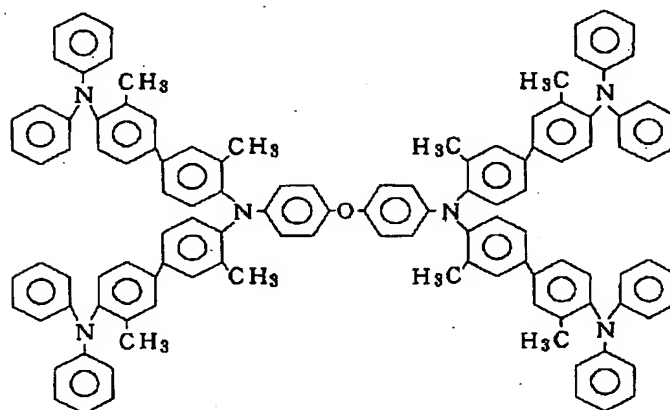
【化37】

(8)



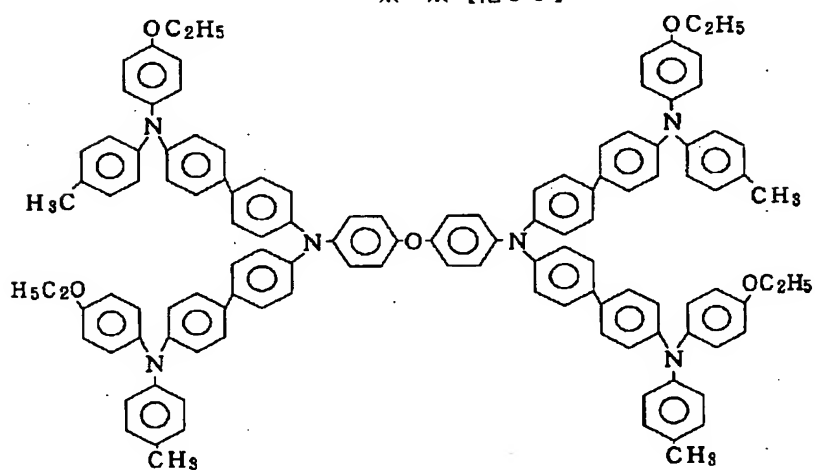
【0047】

* * 【化38】



【0048】

※ ※ 【化39】

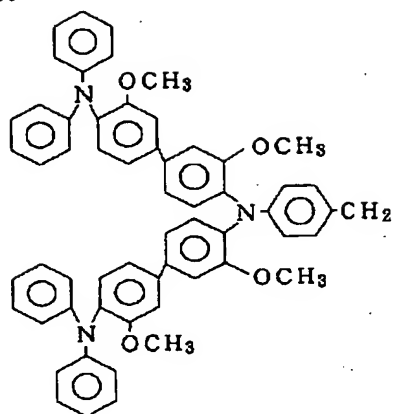


【0049】

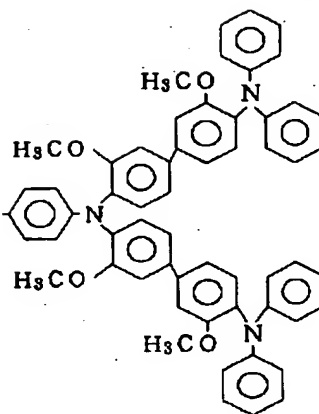
【化40】

(9)

15

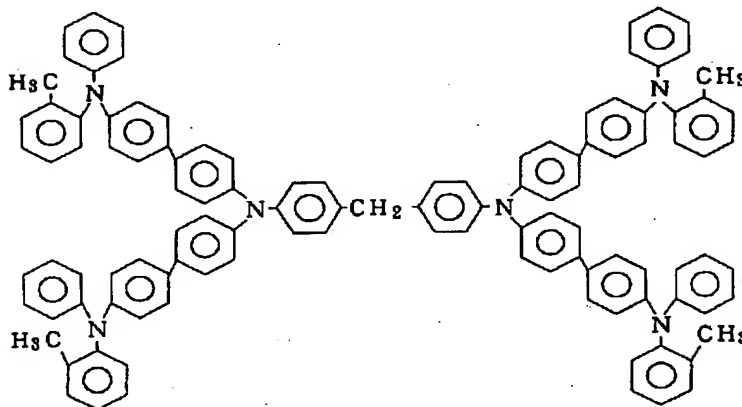


16



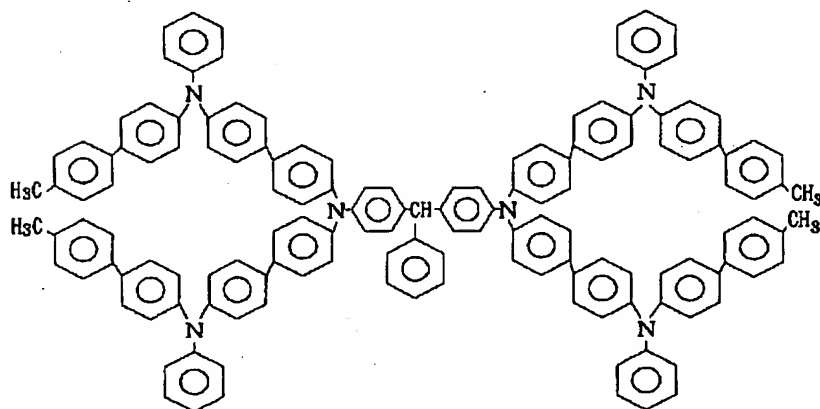
[0050]

* * 【化41】



[0051]

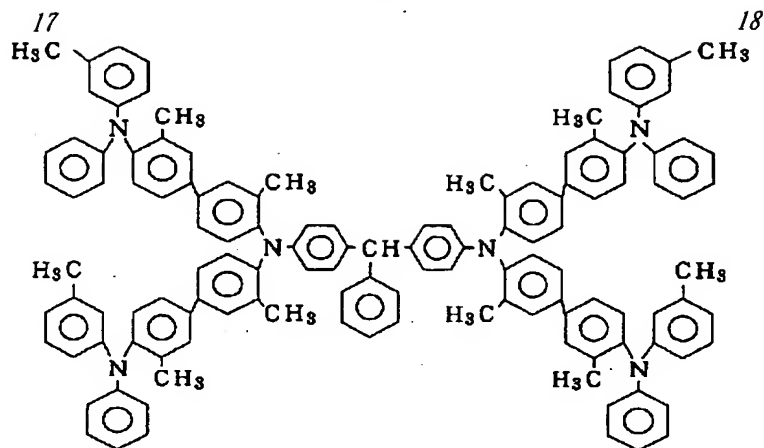
※ ※ 【化42】



[0052]

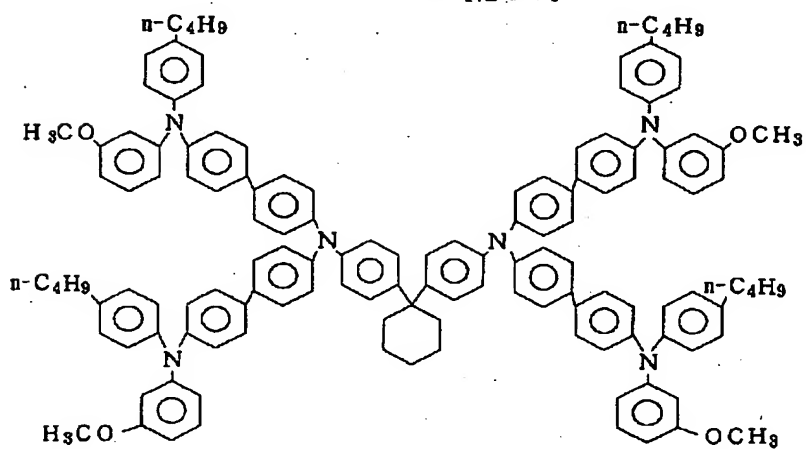
【化43】

(10)



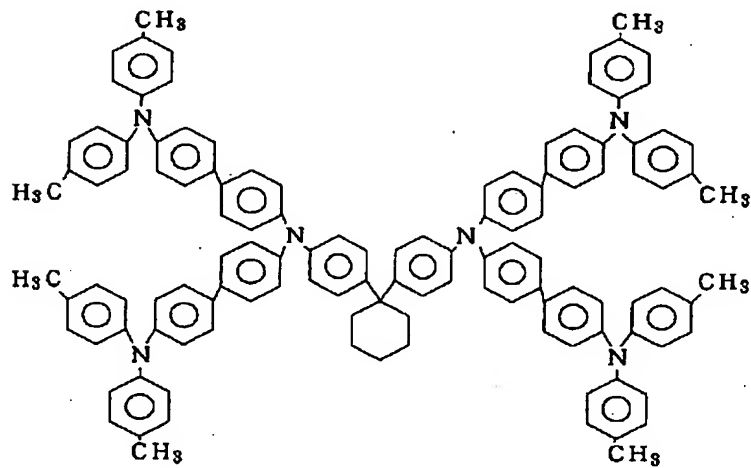
【0053】

* * 【化44】



【0054】

※ ※ 【化45】



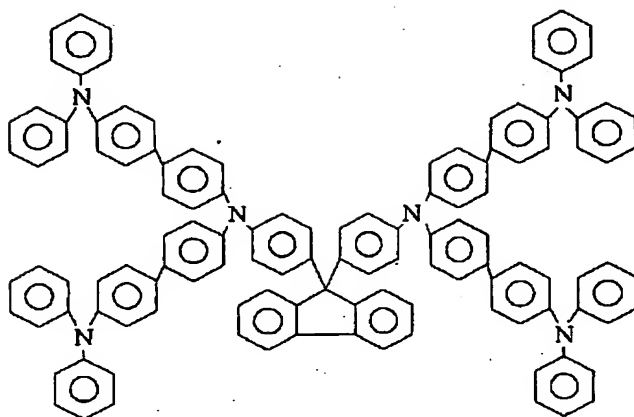
【0055】

【化46】

(11)

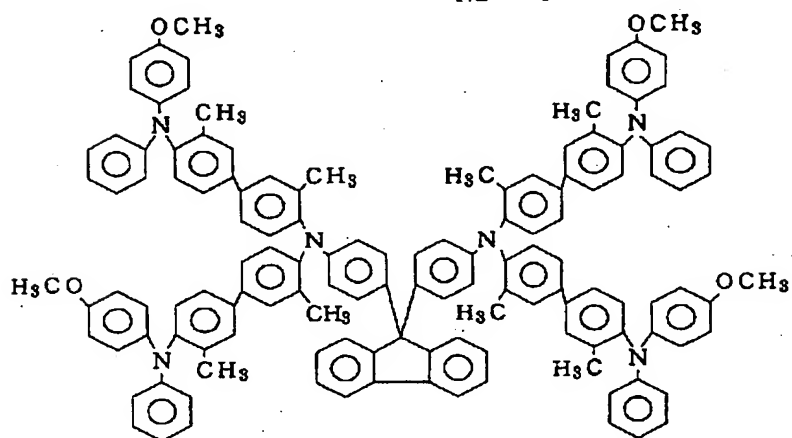
19

20



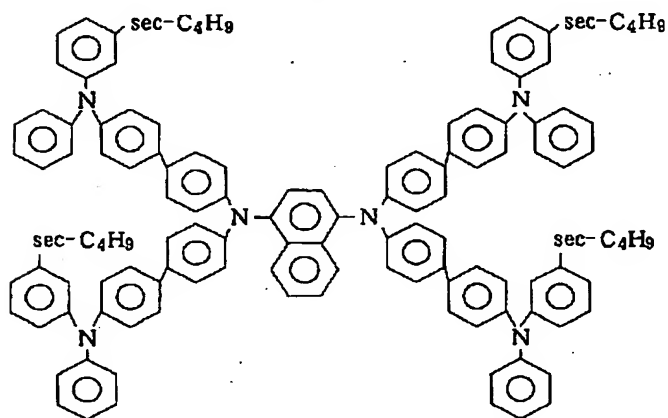
【0056】

* * 【化47】



【0057】

※ ※ 【化48】

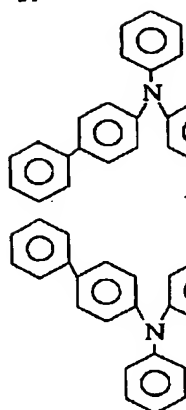


【0058】

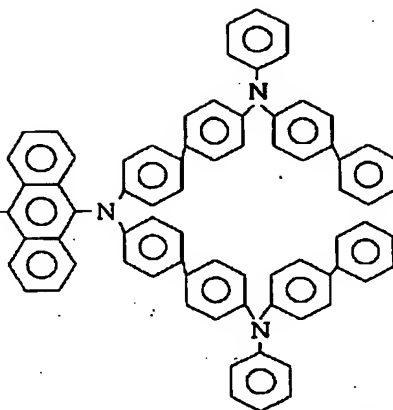
40 【化49】

(12)

21



22



【0059】

【実施例】以下、本発明を実施例により詳細に説明する。

【0060】実施例1

ジフェニルアミン16.9g (0.10モル) と4, 4'-ジヨードビフェニル48.7g (0.12モル)、無水炭酸カリウム16.6g (0.12モル)、銅粉1.27g (0.02モル)、ニトロベンゼン20mlを混合し、190~205°Cで20時間反応させた。反応生成物をトルエン200mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。これをカラムクロマトにより精製して(担体; シリカゲル、溶離液; トルエン/n-ヘキサン=1/3)、N-(4'-ヨード-4-ビフェニル)-N,N-ジフェニルアミン24.9g (収率55.6%)を得た。融点は、139.5~140.5°Cであった。

【0061】続いてN-(4'-ヨード-4-ビフェニル)-N,N-ジフェニルアミン15.2g (0.034モル)、アセトアミド0.95g (0.016モル)、無水炭酸カリウム4.70g (0.034モル) 及び銅粉0.19g (0.003モル)、ニトロベンゼン10mlを混合し、200~212°Cで15時間反応させた。反応生成物をトルエン150mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮してオイル状物とした。オイル状物はイソアミルアルコール120mlに溶解し、水1ml、85%水酸化カリウム1.35g (0.024モル)を加え、130°Cで加水分解した。水蒸気蒸留でイソアミルアルコールを留去後、トルエン200mlで抽出し、水洗、乾燥して濃縮した。濃縮物はカラムクロマトにより精製して(担体; シリカゲル、溶離液; トルエン/n-ヘキサン=1/1)、N,N-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)アミン7.47g (収率71.2%)を得た。融点は212.5~213.5°Cであった。

【0062】更に、N,N-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)アミン7.21g (0.011モル)、4, 4'-ジヨードビフェニル2.03g (0.005モル)、無水炭酸カリウム1.52g

(0.011モル)、銅粉0.13g (0.002モル)、ニトロベンゼン10mlを混合し、195~210°Cで15時間反応させた。反応生成物をトルエン100mlで抽出し、不溶分をろ別除去、濃縮後、n-ヘキサン120mlを加えて粗結晶を取り出した。粗結晶は、カラムクロマトにより精製して(担体; シリカゲル、溶離液; トルエン/n-ヘキサン=1/1)、N,N,N',N'-テトラキス(4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)ベンジジン4.16g (収率56.9%)を得た。得られたものは188~191°Cで融解し、明瞭な融点を示さなかった。元素分析結果及び赤外線吸収スペクトル(測定機器; 日本分光工業(株)製IR-700、測定法; KBr錠剤法)は以下の通りである。

元素分析値; 炭素: 測定値88.78% (理論値88.74%)、水素: 測定値5.58% (理論値5.51%)、窒素: 測定値5.69% (理論値5.75%)。

赤外線吸収特性; 3028cm⁻¹、1591cm⁻¹、1488cm⁻¹、1319cm⁻¹、1275cm⁻¹、1176cm⁻¹、818cm⁻¹、753cm⁻¹、697cm⁻¹。

【0063】実施例2

ジフェニルアミン20.3g (0.12モル) と4, 4'-ジヨードビフェニル60.9g (0.15モル)、無水炭酸カリウム19.3g (0.14モル)、銅粉1.52g (0.024モル)、ニトロベンゼン20mlを混合し、190~205°Cで21時間反応させた。反応生成物をトルエン200mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。これをカラムクロマトにより精製して(担体; シリカゲル、溶離液; トルエン/n-ヘキサン=1/3)、N-(4'-ヨード-4-ビフェニル)-N,N-ジフェニルアミン29.0g (収率54.1%)を得た。融点は、139.5~140.5°Cであった。

【0064】続いてN-(4'-ヨード-4-ビフェニル)-N,N-ジフェニルアミン22.8g (0.051モル)、o-トリジン2.55g (0.012モ

(13)

23

ル)、無水炭酸カリウム6.91g(0.050モル)及び銅粉0.64g(0.001モル)、ニトロベンゼン10mlを混合し、200~212°Cで28時間反応させた。反応生成物をトルエン160mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。得られた固形物はカラムクロマトにより精製して(担体;シリカゲル、溶離液;トルエン/n-ヘキサン=1/1)、N, N, N', N'-テトラキス(4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)-o-トリジン9.94g(収率;55.6%)を得た。得られた物は196~203°Cで融解し、明瞭な融点を示さなかった。元素分析値及び赤外線吸収特性は以下の通りである。

元素分析値; 炭素:測定値88.67%(理論値88.68%)、水素:測定値5.78%(理論値5.68%)、窒素:測定値5.56%(理論値5.64%)。

赤外線吸収特性; 3026cm⁻¹、1589cm⁻¹、1486cm⁻¹、1314cm⁻¹、1270cm⁻¹、1176cm⁻¹、816cm⁻¹、752cm⁻¹、696cm⁻¹。

【0065】実施例3

ジフェニルアミン20.3g(0.12モル)と3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジヨードビフェニル65.1g(0.15モル)、無水炭酸カリウム19.3g(0.14モル)、銅粉1.52g(0.024モル)、ニトロベンゼン20mlを混合し、190~205°Cで21時間反応させた。反応生成物をトルエン200mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。これをカラムクロマトにより精製して(担体;シリカゲル、溶離液;トルエン/n-ヘキサン=2/7)、N-(3, 3'-ジメチル-4'-ヨード-4-ビフェニル)-N, N'-ジフェニルアミン32.6g(収率57.2%)を得た。

【0066】続いてN-(3, 3'-ジメチル-4'-ヨード-4-ビフェニル)-N, N'-ジフェニルアミン24.2g(0.051モル)、o-トリジン2.55g(0.012モル)、無水炭酸カリウム6.91g(0.050モル)及び銅粉0.64g(0.001モル)、ニトロベンゼン10mlを混合し、200~212°Cで30時間反応させた。反応生成物をトルエン150mlで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。得られた固形物はカラムクロマトにより精製して(担体;シリカゲル、溶離液;トルエン/n-ヘキサン=3/4)、N, N, N', N'-テトラキス(3, 3'-ジメチル-4'-ジフェニルアミノ-4-ビフェニル)-o-トリジン9.48g(収率;49.3%)を得た。得られた物は196~212°Cで融解し、明瞭な融点を示さなかった。元素分析値及び赤外線吸収特性は以下の通りである。

元素分析値; 炭素:測定値88.53%(理論値8

24

8.46%)、水素:測定値6.24%(理論値6.29%)、窒素:測定値5.21%(理論値5.25%)。

赤外線吸収特性; 3026cm⁻¹、1589cm⁻¹、1486cm⁻¹、1314cm⁻¹、1270cm⁻¹、1176cm⁻¹、816cm⁻¹、752cm⁻¹、696cm⁻¹。

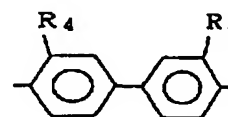
【0067】更に、本発明より見いだされた化合物が有用であることを、具体的な応用例によって説明する。

【0068】応用例1

十分に洗浄したITO電極に、前記実施例1で得られた化合物(一般式(1); R1=H、R2=H、R3=H、A=

【0069】

【化50】



- 20 【0070】、R₄=H)を電荷輸送材として、0.1nm/秒の速度で真空蒸着により50nmの厚さまで蒸着した。蒸着した膜の上に、発光材として、精製したトリス(8-キノリノール)アルミニウム錯体を真空蒸着により、同じく0.1nm/秒の速度で、50nmの厚さまで蒸着した。更に、この膜の上に、真空蒸着によりMg/Ag電極を100nmの厚さで形成して、EL素子を作製した。これらの蒸着は、途中で真空を破らずに連続して行った。また、膜厚は水晶振動子によってモニターした。素子作製後、直ちに乾燥窒素中で電極の取り出しを行い、引続き特性の測定を行った。素子の発光特性は100mA/cm²の電流を印加した場合の発光輝度で定義し、発光の寿命は200cd/m²の発光が得られる電流を連続で印加し、輝度が100cd/cm²になるまでの時間とした。また、保存安定性は室温、乾燥空气中に一定時間放置後、20mA/cm²の電流を印加し、輝度が初期発光特性の半分になるまでの時間で定義した。測定の結果、発光特性は1400cd/m²、発光の寿命は700時間、保存安定性は2100時間であった。比較のために、電荷輸送材として、
- 30 N, N'-ジ(m-トリル)-N, N'-ジフェニルベンジジンを用い、同様の条件でEL素子を作製しその特性を調べた。発光特性、発光の寿命、保存安定性はそれぞれ、2200cd/m²、220時間、460時間であった。

【0071】

【発明の効果】本発明により見いだされた新規ヘキサミン化合物は、電荷輸送性材料として有効に機能するとともに、容易にガラス状態を形成しかつ安定にガラス状態を保持し、熱的、化学的にも安定なため、特に有機電界発光素子における電荷輸送材料として有用な物質であ

50

(14)

25

26

る。

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成14年1月23日(2002. 1. 23)

【公開番号】特開平8-3122

【公開日】平成8年1月9日(1996. 1. 9)

【年通号数】公開特許公報8-32

【出願番号】特願平6-155470

【国際特許分類第7版】

C07C 211/54

211/57

C09K 11/06

【F I】

C07C 211/54

211/57

C09K 11/06

Z

【手続補正書】

【提出日】平成13年6月12日(2001. 6. 12)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

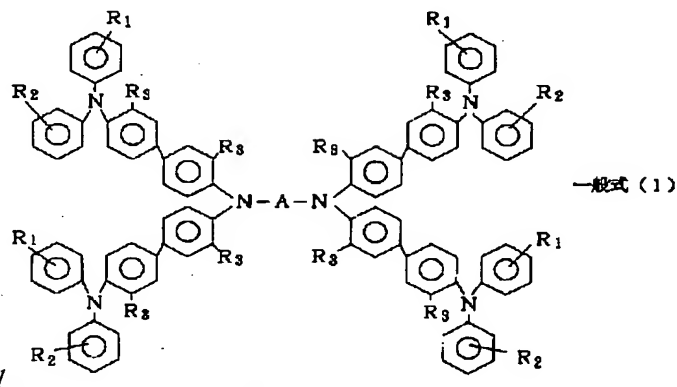
【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式で表されるヘキサアミン化合物

【化1】



【式中R1、R2は同一でも異なっても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または置換もしくは無置換のアリール基を表し、R3は水素原子、メチル基、メトキシ基または塩素原子を表し、Aは下記式で表される2価基を表す。】

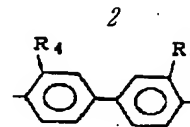
【化2】



【化3】

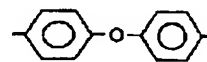


【化4】

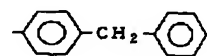


【式中、R4は水素原子、メチル基、メトキシ基または塩素原子を表す。】

【化5】

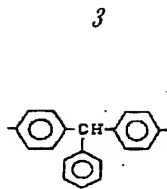


【化6】

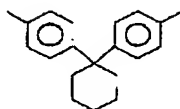


(2)

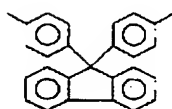
【化7】



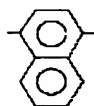
【化8】



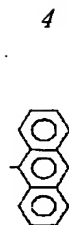
【化9】



【化10】



【化11】



【請求項2】 一般式(1)で表されるヘキサアミン化合物の製造方法。

【手続補正2】

10 【補正対象書類名】明細書

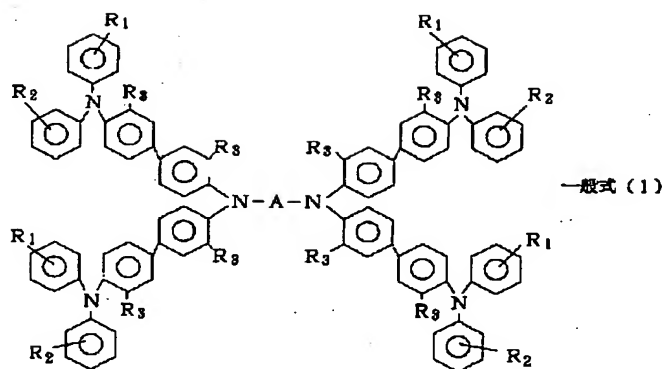
【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正内容】

【0008】

【化12】



【式中R1、R2は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または置換もしくは無置換のアリール基を表し、R3は水素原子、メチル基、メトキシ基または塩素原子を表し、Aは下記式で表される2価基を表す。】

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正内容】

【0012】(式中、R4は水素原子、メチル基、メトキシ基または塩素原子を表す。)

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

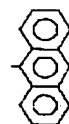
【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正内容】

【0019】

【化22】



【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正内容】

【0020】本発明の一般式(1)で表されるヘキサアミン化合物は新規化合物である。また、本発明はこれらヘキサアミン化合物の製造方法も提供するものである。

(3)

5

これらの化合物は、相当するハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物と相当するジアミン化合物とを縮合させることにより合成することができる。あるいはまた相当するハロゲン化ビフェニルジフェニルアミン化合物とアミド化合物との縮合反応による生成物を加水分

6

解して得られるトリアミン化合物を相当するジハロゲン化合物と縮合させることによっても合成することができる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。